



## 저작자표시-비영리-변경금지 2.0 대한민국

이용자는 아래의 조건을 따르는 경우에 한하여 자유롭게

- 이 저작물을 복제, 배포, 전송, 전시, 공연 및 방송할 수 있습니다.

다음과 같은 조건을 따라야 합니다:



저작자표시. 귀하는 원저작자를 표시하여야 합니다.



비영리. 귀하는 이 저작물을 영리 목적으로 이용할 수 없습니다.



변경금지. 귀하는 이 저작물을 개작, 변형 또는 가공할 수 없습니다.

- 귀하는, 이 저작물의 재이용이나 배포의 경우, 이 저작물에 적용된 이용허락조건을 명확하게 나타내어야 합니다.
- 저작권자로부터 별도의 허가를 받으면 이러한 조건들은 적용되지 않습니다.

저작권법에 따른 이용자의 권리는 위의 내용에 의하여 영향을 받지 않습니다.

이것은 [이용허락규약\(Legal Code\)](#)을 이해하기 쉽게 요약한 것입니다.

[Disclaimer](#)

이학석사학위논문

# TaAs의 표면전자구조의 제일원리계산

2019년 8월

서울대학교 대학원  
물리천문학부  
심민규



# TaAs의 표면전자구조의 제일원리계산

지도교수 박철환

이 논문을 이학석사 학위논문으로 제출함

2019년 7월

서울대학교 대학원

물리천문학부

심민규

심민규의 석사 학위논문을 인준함

2019년 7월

위 원 장     민홍기     (인)

부위원장     박철환     (인)

위     원     김도현     (인)



# 국문초록

바일 준금속은 페르미 에너지 근처에 바일 점들이 존재하는 물질이다. 3차원 바일 준금속 내의 전자의 양자 상태는 3차원 그래핀과 위상 절연체 모두와 닮아있어 비정상적인 수송 성질들을 가지고 있기 때문에 중요성이 대두되고 있다. 수 년 전 공간적 중심대칭이 아닌 화합물인 TaAs를 비롯한 NbP, NbAs, TaP에서 위상적 바일 준금속 구조가 예견되었고, 얼마 되지 않아 이를 증명하기 위해 페르미 호와 같은 바일 준금속의 특징을 확인하는 실험적 검증이 뒤따랐다. 많은 연구자들이 실험 결과를 뒷받침하는 제일원리계산을 수행하였지만, 본 논문에서는 아직은 실험적으로 실현되지 않은 얇은 TaAs 판의 두께에 따른 전자구조 변화를 밀도범함수 이론(density functional theory 또는 DFT)을 기반으로 한 제일원리계산을 통해 알아보았다.

먼저, 이미 알려진 원자 구조와 격자 길이를 이용하여 8개의 층으로 이루어진 덩어리 단위 세포를 기준으로 다양한 층 수의 얇은 판을 구성하였고, 각각에 대해 전자구조계산을 진행하였다. 얇은 판의 경우 표면에서 원자간 거리는 덩어리 상태와 다르기 때문에, 판과 평행한 방향의 격자 길이와 표면에서 층간의 거리를 바꾸어가며 총 에너지 계산을 수행하여 안정화된 구조를 구하고 이에 대해서도 전자구조계산을 진행하였다.

결과로 나온 전자구조는 전자 띠 구조, 2차원 페르미 표면 그리고 2차원 스핀 텍스처를 통해 표현하였다. 안정화 작업 중 판에 수직인 방향이 판과 평행한 방향보다 계산 결과로 얻어진 전자 구조의 변화에 큰 영향을 미침을 확인하였고, 8개의 층으로 이루어진 덩어리 단위 세포를 나누어 더 적은 층으로 이루어진 판에 대해 계산을 할 경우 적어도 하나의 단위

세포를 갖춘 경우와 전자구조가 완전히 달라짐도 관찰할 수 있었다.

**주요어 :** 표면전자구조, 비소화 탄탈륨, 바일 준금속

**학번 :** 2015-22590

# Contents

<b>Abstract in Korean</b> . . . . .	<b>i</b>
<b>I. Introduction</b> . . . . .	<b>1</b>
<b>II. Method</b> . . . . .	<b>5</b>
2.1 TaAs의 원자 구조 . . . . .	5
2.2 밀도범함수 이론(Density functional theory) . . . . .	7
2.3 Quantum Espresso 계산 순서 . . . . .	11
<b>III. Results</b> . . . . .	<b>13</b>
3.1 표면 안정화 . . . . .	13
3.2 전자 띠 구조 . . . . .	17
3.3 페르미 표면과 스핀 텍스처 . . . . .	22
<b>IV. Conclusions</b> . . . . .	<b>29</b>
<b>Bibliography</b> . . . . .	<b>31</b>
<b>Abstract</b> . . . . .	<b>35</b>





# List of Figures

Figure 1.	TaAs의 결정 격자와 격자 상수 . . . . .	5
Figure 2.	계산에 사용된 얇은 판 격자 모델(8층) . . . . .	6
Figure 3.	(a) 두께 16층짜리 TaAs 얇은 판에 대해 $z$ 방향 안정화 작업을 하기 전과 한 후의 층간 간격의 변화와 (b) (a)의 이해를 돕기위한 TaAs 층간 간격 표시 . . . . .	13
Figure 4.	두께 16층짜리 TaAs 판에 대해 $z$ 방향 안정화작업을 하기 전과 한 후에 대해 $z$ 에 따라 pseudopotential과 하트리 에너지의 합을 $x-y$ 평면에서 평균을 낸 값을 표현한 그래프 . . . . .	15
Figure 5.	얇은 TaAs 판의 두께에 따른 격자 상수 $a$ 의 변화 . . .	16
Figure 6.	(a) 표면 안정화를 거친 두께 16층 짜리 TaAs 판의 전자 띠 구조 (b) $z$ 에 따른 color grading . . . . .	18
Figure 7.	두께 16층 짜리 TaAs 판의 전자 띠 구조 (a) 안정화 하기 전 (b) $z$ 방향으로 표면 안정화 (c) 격자 상수까지 조절하여 표면 안정화 . . . . .	19
Figure 8.	두께가 8층(덩어리 단위 격자의 두께)이하인 경우의 전자 띠 구조. 각각 (a) 2층 (b) 4층 (c) 6층 (d) 8층의 경우이다. . . . .	20
Figure 9.	두께가 8층(덩어리 단위 격자의 두께)의 배수인 경우의 전자 띠 구조. 각각 (a) 16층 (b) 24층 (c) 32층의 경우이다. . . . .	21

Figure 10. (a) 표면 안정화를 거친 두께 16층 짜리 TaAs 판의 페르미 표면 (b) $z$ 에 따른 color grading . . . . .	23
Figure 11. 표면 안정화를 거친 두께 16층 짜리 TaAs 판의 스핀 텍스처. 빨간 점이 페르미 표면을 구성하고 파란 화살이 스핀의 방향과 크기를 보여준다. . . . .	23
Figure 12. 두께 16층 짜리 TaAs 판의 페르미 표면 (a) 안정화 하기 전 (b) $z$ 방향으로 표면 안정화 (c) 격자 상수까지 조절하여 표면 안정화. 색은그림 10(b)를 이용 . . . . .	24
Figure 13. 두께가 8층(덩어리 단위 격자의 두께)이하인 경우의 페르미 표면. 각각 (a) 2층 (b) 4층 (c) 6층 (d) 8층의 경우이다. 색은그림 10(b)를 이용 . . . . .	25
Figure 14. 두께가 8층(덩어리 단위 격자의 두께)의 배수인 경우의 페르미 표면. 각각 (a) 16층 (b) 24층 (c) 32층의 경우이다. 색은그림 10(b)를 이용 . . . . .	25
Figure 15. 두께 16층 짜리 TaAs 판의 스핀 텍스처 (a) 안정화 하기 전 (b) $z$ 방향으로 표면 안정화 (c) 격자 상수까지 조절하여 표면 안정화 . . . . .	26
Figure 16. 두께가 8층(덩어리 단위 격자의 두께)이하인 경우의 스핀 텍스처. 각각 (a) 2층 (b) 4층 (c) 6층 (d) 8층의 경우이다. . . . .	27
Figure 17. 두께가 8층(덩어리 단위 격자의 두께)의 배수인 경우의 스핀 텍스처. 각각 (a) 16층 (b) 24층 (c) 32층의 경우이다. . . . .	27

# Chapter 1

## Introduction

밀도범함수 이론(density functional theory, DFT)을 이용한 제일원리 계산은 Hohenberg-Kohn 정리를 기점으로 컴퓨터의 발전을 통해 많은 원자 단위의 계에서 볼 수 있는 복잡한 전자 구조를 예측할 수 있게 해주었다 [1]. Hohenberg-Kohn 정리는 바닥상태의 (전자의)파동함수는 밀도함수로부터 유일하게 도출된다는 내용을 포함하는데, 바닥상태의 밀도함수가 동일한 두 계는 가해지는 퍼텐셜이 동일함을 증명함을 통해 바닥상태의 파동함수 역시 같음을 증명하는 것이 가능하다. 즉 바닥상태의 밀도함수는 그 계의 유일성을 포함하고 있다는 것을 알 수 있다. 일반적인 다체 파동함수는 입자의 개수에 비례하는 위치변수를 가지게 되기 때문에, 파동함수 하나에 필요한 저장공간은 입자의 개수의 지수함수 꼴이 된다. 이는 전자의 수가 많은 금속류의 계의 계산적 접근이 불가능하게 된다는 것인데, 3차원 밀도함수의 경우 3개의 위치 변수만 필요로 하기 때문에 슈뢰딩거 방정식을 포함하여 에너지 기대값 등을 밀도함수를 기준으로 재구성한 밀도범함수 이론은 제일원리계산에 이용하기 적합하다. 이러한 밀도범함수 이론을 이용하여 전자구조를 계산하는 프로그램은 현대에 많은 발전이 있었으며, 본 연구에서는 Quantum ESPRESSO를 이용하였다 [2, 3].

밀도범함수 이론을 이용한 제일원리계산으로 본 연구에서는 얇은 TaAs 판의 표면전자구조를 알아보았다. TaAs는 바일 준금속으로 분류되는 물질로, 비슷한 시기에 전이금속 단일인화물인 TaP, NbAs, NbP와 함께 위상적 바일 준금속의 특징을 갖는 것이 예견된 물질이다 [4, 5]. 바

일 준금속은 바일 점이 페르미 에너지 근처에 있는 물질인데, 바일 점은 물질의 구조가 시간대칭성(time-reversal symmetry) 또는 공간 점대칭성(space inversion symmetry) 중 하나만 깨져있을 때 볼 수 있다. 처음으로 바일 준금속으로 보고된 물질은  $Rn_2Ir_2O_7$  [6]이며, 이후에도 전이금속 단일인화물 이전에 많은 물질이 바일 준금속의 특징을 보여줄 것이라 예견되었지만, 보고된 물질들은 합성이 어렵고 스핀 겹침이 시간대칭성이 깨지면서 없어지는 물질들이었기 때문에 실험적으로 자기구역의 정렬을 필요로 하였기에 ARPES(angle-resolved photo emission spectroscopy)를 이용한 실험적 검증이 어려웠다. 이에 반해 바일 전이금속 단일인화물들의 경우 공간대칭성이 깨져있는 물질로 실험을 통해 확인하기가 비교적 쉬운 물질이었기에 보고된 이후 실험적으로 바일 준금속의 특징이 확인이 TaAs를 위주로 빠른 시일 내에 이루어졌다 [7, 8, 9]. 이후 네 종류의 전이금속 단일인화물에 대해 완전히 제일원리계산(fully ab-initio)으로 구한 전자구조가 보고되었으며 [10], 그 이듬해에는 실험적으로 NbP의 페르미호가 직접적으로 확인되었다 [11]. 최근에는 TaAs를 이용하여 중간적외선 영역에서 높은 효율의 광기전력 효과를 낼 수 있게 되었는데, 이전까지 존재하던 물질의 10배 이상의 효율이 보고되었다 [12].

본 연구에서 계산한 얇은 TaAs 판의 전자구조는 아직 실험적으로 확인된 바가 없으며, 계산의 순서는 다음과 같다. 덩어리 구조에 대해 알려진 격자 길이로부터 시작하여 8개의 층으로 이루어진 덩어리 단위 세포를 기준으로 쪼개거나 더하여 2, 4, 6, 8, 16, 24, 32 개의 층으로 이루어진 판을 구성하였고, 주기성을 위해 판 사이에 진공을 두고 이 판이 무한히 반복되는 구조에 대해 전자구조계산을 실행하였다. 얇은 판의 경우 표면에서는 덩어리 상태에서의 원자간 간격과 다른 양상을 보이기 때문에, 판과 평행한 방향의 격자 길이와 표면에서 층간의 거리를 바꾸어가며 총 에너지

계산을 수행하여 안정화된 구조도 구하였다. 안정화 작업을 통해 표면의 원자간 간격이 달라지는 것을 전자구조계산에 이용되는 원자핵의 유사 퍼텐셜과 전자의 하트리퍼텐셜의 합이 달라지는 것과 비교하였다. 앞서 구한 각각의 원자 구조들로 전자구조계산을 하여 계산된 전자구조를 2차원 페르미 표면과 2차원 스핀 텍스처로 표현하였다.



## Chapter 2

## Method

### 2.1 TaAs의 원자 구조

정방 구조로 볼 때 덩어리 TaAs 결정의 격자 구조는 아래 그림 1과 같다.

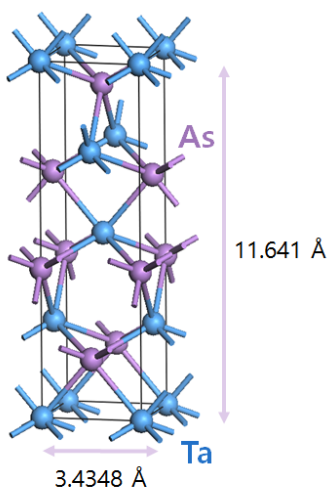


그림 1: TaAs의 결정 격자와 격자 상수

격자 안에는 각각 4개의 Ta와 As 원자가 들어있으며, 최소 단위인 단위 세포 안에는 2개의 원자만 들어간 것으로 볼 수도 있다. 계산을 시작하는 격자 상수는 [4]에서 사용된 것을 그대로 가져왔으며, 그림 1에 쓰여있는 것처럼  $a = 11.641\text{\AA}$ ,  $c = 3.4348\text{\AA}$ 이다. 덩어리 구조는  $C_{4v}$ 대칭



군에 속한다.

기본 결정 격자는 총 8개의 층으로 이루어져 있는데, Ta 또는 As 원자만으로 구성된 층이 번갈아가면서 나타난다. 계산에 사용될 얇은 TaAs 판의 경우 2, 4, 6, 8, 16, 24, 32 층으로 구성된 판들을 이용하였다. 계산을 위해서는 주기적 격자가 필요한데, 각 층 위로  $10\text{\AA}$ 의 공간을 두어 각 판의 영향이 최소화 되는 상황의 격자를 사용하였다. 덩어리 구조와 달리 얇은 판으로 나누어 계산을 할 경우  $C_4$ 대칭이 사라지고  $C_2$ 대칭만 남는다. 수직 거울 대칭 두 개는 그대로 남아있기 때문에  $C_{2v}$ 대칭군에 속함을 알 수 있다. 얇은 판 계산에 사용된 격자의 예시는 아래 그림 2와 같다.

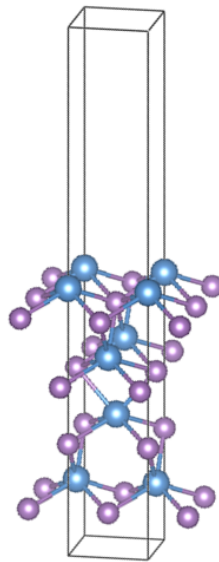


그림 2: 계산에 사용된 얇은 판 격자 모델(8층)

## 2.2 밀도범함수 이론(Density functional theory)

이 절에서는 제일원리계산에 이용되는 밀도범함수 이론의 기초인 Hohenberg-Kohn 정리 [1]와 Kohn-Sham 방정식 [13]에 대해 알아본다.

Hohenberg-kohn 정리는 두 개가 있는데, 그 중 첫 번째 정리는 계의 외부 퍼텐셜  $v_{ext}(\mathbf{r})$ 은 상수 차이를 제외하면 바닥상태의 전자 밀도 함수  $n(r)$ 에 의해 유일하게 결정된다는 내용이다. 이 부분의 간단한 증명은 다음과 같다. 먼저 전자밀도함수  $n(\mathbf{r})$ 를 통해 구할 수 있는 에너지 범함수  $E[n(\mathbf{r})]$ 를 다음과 같이 정의한다.

$$E[n(\mathbf{r})] = \int n(\mathbf{r})v_{ext}(\mathbf{r})d\mathbf{r} + F[n(\mathbf{r})] \quad (2.1)$$

여기서  $F[n(\mathbf{r})]$ 는 현재 전자밀도함수의 범함수라는 것 만 알고 있다. 에너지를 전자밀도함수의 범함수로도 볼 수 있지만, 파동함수  $\Psi$ 에 대한 해밀토니안  $\hat{H}$ 의 기대값으로 다음 Eq. (2.2)처럼 볼 수도 있다.

$$E[n(\mathbf{r})] = \langle \Psi | \hat{H} | \Psi \rangle \quad (2.2)$$

해밀토니안  $\hat{H}$ 는 운동 에너지 연산자  $\hat{T}$ , 상호작용 에너지 연산자  $\hat{V}_{ee}$  그리고 외부퍼텐셜 연산자  $\hat{V}_{ext}$ 의 합으로 볼 수 있다.

$$\hat{H} = \hat{T} + \hat{V}_{ee} + \hat{V}_{ext} \quad (2.3)$$

여기서  $\hat{T}$ 와  $\hat{V}_{ee}$ 는 계의 전자의 개수와만 관련된 연산자이기 때문에, 전자의 개수  $N$ 와 외부 퍼텐셜  $v_{ext}(\mathbf{r})$ 만으로 해밀토니안 연산자  $\hat{H}$ 이 완전하게 정해진다.

이제 증명의 핵심 부분으로 넘어가서, 귀류법을 이용해 서로 다른 외부 퍼텐셜  $v_{ext,1}(\mathbf{r})$ 과  $v_{ext,2}(\mathbf{r})$ 이 같은 바닥상태의 전자밀도함수  $n_0(\mathbf{r})$ 를 갖는다면 모순이 생기고 결국 두 외부 퍼텐셜이 같음을 증명한다. 각각의 계에 해당하는 해밀토니안을  $\hat{H}_1, \hat{H}_2$  그리고 파동함수를  $\Psi_1, \Psi_2$ 라 하자. 변분 원리에 의해 다음 부등식 Eq. (2.4)를 얻을 수 있다.

$$\begin{aligned}
 E_1^0 &< \langle \Psi_2 | \hat{H}_1 | \Psi_2 \rangle = \langle \Psi_2 | \hat{H}_2 | \Psi_2 \rangle + \langle \Psi_2 | \hat{H}_1 - \hat{H}_2 | \Psi_2 \rangle \\
 &= E_2^0 + \langle \Psi_2 | \hat{V}_{ext,1} - \hat{V}_{ext,2} | \Psi_2 \rangle \\
 &= E_2^0 + \int n_0(\mathbf{r})(v_{ext,1}(\mathbf{r}) - v_{ext,2}(\mathbf{r}))d\mathbf{r}
 \end{aligned} \tag{2.4}$$

여기서  $E_1^0$ 와  $E_2^0$ 는  $\hat{H}_1$ 와  $\hat{H}_2$ 의 바닥상태의 에너지이고,  $\hat{V}_{ext,1}$ 와  $\hat{V}_{ext,2}$ 는 각각 외부 퍼텐셜 연산자이다. 위 식에서 첨자 1과 2를 모두 바꾼 부등식 역시 참이며, 두 부등식을 합할 경우 다음의 모순된 부등식인 Eq. (2.5)가 나온다.

$$E_1^0 + E_2^0 < E_2^0 + E_1^0 \tag{2.5}$$

따라서 애초에 부등식 Eq. (2.4)는 거짓이어야 하고, 외부 퍼텐셜  $v_{ext,1}(\mathbf{r})$ 과  $v_{ext,2}(\mathbf{r})$ 은 상수차이를 제외하고 동일해야한다.

두 번째 정리는 바닥상태의 에너지는 전자밀도함수의 변분을 통해 구할 수 있다는 것이다. 즉, 주어진 계의 에너지를 최소로 만드는 전자밀도함수가 바닥상태의 전자밀도함수라는 것이다. 이 부분의 증명은 생략한다.

Hohenberg-Kohn 정리를 통해 우리는 계의 바닥상태를 기술하기 위해  $N$ -입자 슈뢰딩거 방정식을 풀어 파동함수를 구하는 방법도 있지만, 바닥상태의 전자밀도함수를 다른 방법을 통해 구할 수 있다면 이를 통해

계를 기술하는 것도 가능하다는 것을 알 수 있다. 실제로 큰 계산적 관점에서 이점이 있기에 후자를 이용한다.

바닥 상태의 전자밀도함수를 구하는 과정은 Kohn-Sham 방정식을 통해 구할 수 있다. 기존의 계와 같은 전자밀도함수를 주는 전자간 상호작용이 없는 가상의 계(Kohn-Sham 계)를 구성해서 이 계에 대한 방정식을 푸는 방법이며, 다음 식들로 구성된다.

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m}\nabla^2 + v_{eff}(\mathbf{r})\right)\phi_i(\mathbf{r}) = \epsilon_i\phi_i(\mathbf{r}) \quad (2.6)$$

$$\rho(\mathbf{r}) = \sum_i^N |\phi_i(\mathbf{r})|^2 \quad (2.7)$$

$$v_{eff}(\mathbf{r}) = v_{ext}(\mathbf{r}) + e^2 \int \frac{\rho(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d\mathbf{r}' + v_{xc}(\mathbf{r}) \quad (2.8)$$

Eq. (2.6)이 Kohn-Sham 방정식이며, Kohn-Sham 퍼텐셜  $v_{eff}(\mathbf{r})$ 에 대한 단일입자 슈뢰딩거 방정식과 같다.  $\phi_i(\mathbf{r})$ 는 Kohn-Sham states로, 이 자체가 실질적인 물리적 의미를 가지고 있지는 않다. 이 방정식을 풀기 위해서는  $v_{eff}(\mathbf{r})$ 를 아는 것이 필수적인데, 이는 Eq. (2.8)을 통해 주어지며, 여기서 두 번째 적분항인 하트리 에너지 항과, exchange-correlation 에너지 항  $v_{xc}(\mathbf{r})$ 을 구하기 위해서는 전자밀도함수  $\rho(\mathbf{r})$ 를 알아야 하는데, 이는 Eq. (2.7)을 통해 주어진다.  $v_{ext}(\mathbf{r})$ 는 핵에 가까운 전자(inner core electron)들과 원자핵이 만들어내는 퍼텐셜을 묶어 근사한 pseudopotential을 사용한다. 보통 금속과 준금속에서 전기적 특성 뿐 아니라 결합에 관여하는 것은 외곽 전자(valence electron)이기 때문에 이를 핵에 가까운 전자와 구분하여 계산할 경우 큰 계산적 이점을 얻을 수 있다. Kohn-Sham 계는 서로 상호작용이 없는 전자들로 이루어진 계이기 때문에,  $N$ -입자 Kohn-Sham

파동함수는  $\phi_i(\mathbf{r})$ 의 Slater determinant로 주어지게 된다.

Exchange-correlation 에너지 항에 대한 논의는 잠시 뒤로하고, 위 방정식을 통해 전자밀도함수  $\rho(\mathbf{r})$ 를 구하려면 자체일관적(self-consistent) 되풀이 방법을 통해 계산해야 한다는 것을 알 수 있다. 즉, 적당한 전자밀도함수  $\rho_{in}(\mathbf{r})$ 에서 시작하여 Eq. (2.8)을 통해  $v_{eff}(\mathbf{r})$ 를 얻고, 이를 Eq. (2.6)에 대입하여  $\phi_i(\mathbf{r})$ 를 구하고, 이를 Eq. (2.7)에 대입하여  $\rho_{out}(\mathbf{r})$ 을 얻을 수 있는데,  $\rho_{in}(\mathbf{r})$ 과  $\rho_{out}(\mathbf{r})$ 가 같을 때까지(일정 수치 이하로 가까워질 때까지) 계산을 반복하여 나온 값을  $\rho(\mathbf{r})$ 로 채택한다.

이렇게  $\rho(\mathbf{r})$ 와 그에 해당하는 Kohn-Sham states  $\phi_i(\mathbf{r})$ 를 가지고 다음의 식을 통해 기존의 계(Kohn-Sham 계가 아닌 실제 물리 계)의 에너지를 구할 수 있다.

$$E[\rho] = T_s[\rho] + \int v_{ext}(\mathbf{r})\rho(\mathbf{r})d\mathbf{r} + E_H[\rho] + E_{xc}[\rho] \quad (2.9)$$

$T_s[\rho]$ 와  $E_H[\rho]$ 는 각각 운동 에너지와 하트리(쿨롱) 에너지로, 다음의 두 식을 통해 구할 수 있다.

$$T_s[\rho] = \sum_i^N \int \phi_i^*(\mathbf{r}) \left( -\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 \right) \phi_i(\mathbf{r}) d\mathbf{r} \quad (2.10)$$

$$E_H[\rho] = \frac{e^2}{2} \int \int \frac{\rho(\mathbf{r})\rho(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d\mathbf{r} d\mathbf{r}' \quad (2.11)$$

$E_{xc}[\rho]$ 는 exchange-correlation 항으로, 앞서 식 Eq. (2.8)에 나온  $v_{xc}(\mathbf{r})$ 와 다음과 같은 관계를 가지고 있다.

$$v_{xc}(\mathbf{r}) \equiv \frac{\delta E_{xc}[\rho]}{\delta \rho(\mathbf{r})} \quad (2.12)$$

Exchange-correlation 에너지는 계산적인 목적을 위해 근사를 통해 사용한다. 주로 LDA(local density approximation) 방법과 GGA(generalized gradient approximation) 방법을 이용하는데, LDA의 경우 에너지 범함수  $E_{xc}[\rho]$ 를 구하기 적분할 때 각 지점에서의 에너지함수가  $\rho(\mathbf{r})$ 값에만 의존하는 것으로 보는 근사 방법이고, GGA의 경우에는 그 미분인  $\nabla\rho(\mathbf{r})$ 까지도 의존하는 함수로 보는 방법이다. LDA에서 스핀의 의존성도 고려한 경우를 LSDA(local spin density approximation)라고 부르며, GGA의 경우 보통 스핀의 의존성도 포함한 계산을 말한다.

결국 밀도범함수 이론은 앞서 설명한 근사를 넣기 전까지는 양자역학의 기본 이론에서 직접적으로 유도된 완전한(formally exact) 방법으로, 따라서 이를 통해 계산을 하는 것은 제일원리계산이라고 부른다. 실질적으로는 계산하고자 하는 물질의 결정구조(원자의 종류와 위치)만 알 경우 그 원자에 해당하는 pseudopotential만 가지고 있으면 계산을 할 수 있는 방법이다.

## 2.3 Quantum Espresso 계산 순서

밀도범함수 이론을 이용한 제일원리계산을 수행해주는 프로그램인 Quantum Espresso를 통해 결과를 내기까지의 방법을 이 절에서 설명한다.

먼저 계산은 크게 scf(self-consistent) 계산과 nscf(non-scf) 계산 두 종류가 있다. scf 계산은 앞서 2.2절에서 설명한 전자밀도함수를 자체일관적 되풀이 방법을 통해 전자밀도함수를 수렴시키는 계산을 포함하는데, 이는 결국 많은 양의 계산을 필요로 한다. 이렇기에 scf 계산에 사용되는 k-mesh의 크기는 한계가 있고, scf 계산에서 도출된 전자밀도함수를 이용해 nscf 계산을 하여 더 조밀한 k-mesh에서의 물리량을 구한다. scf 계산에서의

k-mesh가 충분히 조밀하고, 전자밀도함수가 수렴한 상황( $\rho_{in}$ 과  $\rho_{out}$ 의 차이가 일정 값보다 작은 상황)에서 같은 값에 대해 scf 계산 결과와 nscf 계산 결과가 주는 차이는 미미할 것이므로 계산의 속도를 위해 이런 과정을 거치는 것이다. 정리하면 scf 계산에서 계의 전체 에너지, 그리고 전자밀도함수를 구할 수 있고, 이 전자밀도함수를 가지고 nscf 계산을 하여 전자 띠 구조 등 원하는 값을 얻어내면 된다. 사용한 k-mesh의 크기의 경우 scf 계산에서는  $12 \times 12 \times 1$ 를, nscf 계산에서는  $100 \times 100 \times 1$ 를 사용하였다. 실제로 프로그램에서 계산 자체는 TaAs 구조의 대칭성 때문에  $1/4$ 만큼의 크기의 k-mesh에 대해 이루어졌다. Exchange-correlation 에너지의 경우 GGA 근사를 이용하였다. 그림 2과 같이 판 사이의 간격을 두고 계산을 진행하였지만 판의 dipole moment가 유의미하게 클 수 있음을 염두하여 [14]의 방법을 이용한 Quantum Espresso에 내장되어 있는 dipole-correction을 사용하였다.

얇은 TaAs 판에 대해서 다음과 같은 순서를 통해 계산결과를 얻었다. 먼저 각각의 두께의 판에 대해 표면 안정화 작업을 통해 새로운 원자들의 좌표값을 얻었다. 판에 수직인 방향으로의 각 원자들의 좌표값을 움직여 에너지가 최소가 되는 구조를 찾고, 그 뒤 판 방향으로의 안정화는 격자 상수  $a$  값을  $0.01\text{\AA}$ 단위로 조절하여 에너지가 최소가 되는 격자 상수를 구하는 식으로 진행하였다. 그 뒤 모든 판에 대해(모든 두께에 대해 덩어리 구조의 격자 상수와 좌표를 그대로 사용한 좌표, 판에 수직인 방향으로 안정화한 좌표, 여기서 격자 상수  $a$ 를 바꾼 구조에 대해) 전자구조를 계산하여 전자 띠 구조와 페르미 표면, 그리고 스핀 텍스처를 얻었다.

## Chapter 3

## Results

### 3.1 표면 안정화

표면 안정화 작업은 먼저 원자들을 판에 수직인 방향( $z$  방향)으로 움직여 진행하였고, 그 뒤 수직 위치는 고정된 체로 격자 상수  $a$ 의 값만 바꾸어 수평간격을 바꿈에 따라 에너지가 최소가 되는 좌표를 구하였다.  $z$  방향 표면 안정화 결과에 대해 먼저 소개한다.

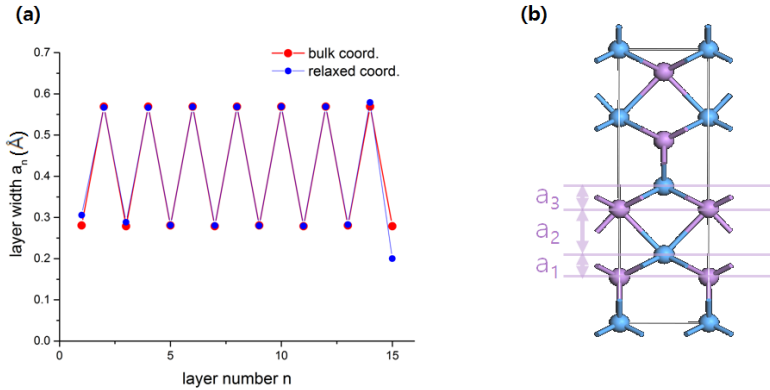


그림 3: (a) 두께 16층짜리 TaAs 얇은 판에 대해  $z$  방향 안정화 작업을 하기 전과 한 후의 층간 간격의 변화와 (b) (a)의 이해를 돕기위한 TaAs 층간 간격 표시

그림 3은 16층짜리 TaAs 판에 대해 판의 수직인 방향에 대한 표면 안정화 작업 결과를 표현한 것으로, 총 15개의 층간 간격의 표면 안정화에



다른 간격 변화를 볼 수 있다. 기본적으로 양쪽 극단을 제외한 내부 원자들의 위치는 거의 변하지 않았음을 알 수 있다. 계산상으로는 그림 3(b)에서 보라색에 해당하는 As 층을 맨 아래 두고, 하늘색에 해당하는 Ta 층을 맨 위에 두었기 때문에  $a_1$ 은 그림에 표시된 대로의 층간 간격을 나타낸다. 기본적으로 층간 간격이 단순진동하는 것을 보고 알 수 있지만, 각 Ta층(As 층)은 위 아래로 As층(Ta층)으로 둘러 쌓여있지만, 그 중 더 가까운 As층(Ta층)이 있고, 서로 가까운 Ta-As층 끼리 묶어서 이 사이의 층간 간격을 intralayer width, 서로 먼 층 간의 간격을 interlayer width라고 부르기도 한다.  $a_1$ 의 경우 조금 증가했고,  $a_{15}$ 의 경우 감소했는데, 이는 단순히 고전적 용수철 모델로 원자간의 결합을 이해할 경우 설명하기 쉽지 않다. 덩어리 구조를 판이 무한히 반복되었다고 볼 때, 한 판의 위쪽 끝이 그 위 판의 아래쪽 끝을 밀어내고 있었다면 판과 판을 떼어놓았을 때 양쪽 극단( $a_1$ 과  $a_{15}$ 에 해당하는 극단) 모두 팽창할 것이고, 만약 판끼리 당기면서 평형을 이루었다면 판과 판을 떼어놓았을 때 양쪽 극단이 모두 수축할 것이기 때문이다. 또, As 극단의 그 다음 층간 간격들을 볼 때  $a_2$ 의 경우 변화가 거의 없었지만  $a_3$ 의 경우 증가하고, Ta 극단의 경우는  $a_{15}$ 와는 반대로  $a_{14}$ 는 오히려 증가했지만,  $a_{13}$  부터는 큰 차이가 없음도 눈여겨 볼 수 있다. 이러한 양 극단에서의 경향은 결정 격자인 8층의 배수가 되는 층들(8, 16, 24, 32 층)에 대해서 모두 나타났다.

그림 4는 앞서와 같은 16층짜리 TaAs 판에 대해  $z$ 에 따라 Pseudopotential과 하트리 에너지의 합을 나타낸 것이다. 각 '웅덩이'(퍼텐셜이 낮게 파여 들어간 곳)에는 세부적으로 작은 두 웅덩이가 있는데, 이는 각각 Ta와 As 원자가 있는 위치를 말해준다. As웅덩이가 Tas 웅덩이보다 퍼텐셜이 더 낮음을 알 수 있다. 그림 3(a)에서  $z$ 방향 표면 안정화는  $a_1$ 을 증가시키고  $a_{15}$ 는 감소시킴을 알 수 있는데, 이들은 각각 intralayer width로 이 때문에

첫 큰 웅덩이( $z = 5$  부근)의 경우 전체적으로 더 위로 올라가지만 작은 웅덩이인 Ta웅덩이와 As웅덩이는 더 뚜렷하게 나타나고, 마지막 큰 웅덩이( $z = 43$  부근)의 경우 두 작은 웅덩이의 경계가 모호해지는 것을 알 수 있다. 이 부분(경계가 모호해지는 부분)에서 Ta원자와 As의 거리는 아주 가까워졌다고 볼 수 있지만, 사실 그림 4는 각  $z$ 에 대해  $x-y$  평면에서의 평균을 나타낸 값이고 실제로 한 intralayer 내에서 Ta 원자와 As원자의  $x$ (혹은  $y$ ) 위치는 다르기 때문에 실제로 두 원자 사이의 거리는 덩어리 결정 구조와 비교했을 때 많이 가까워지지 않는다.

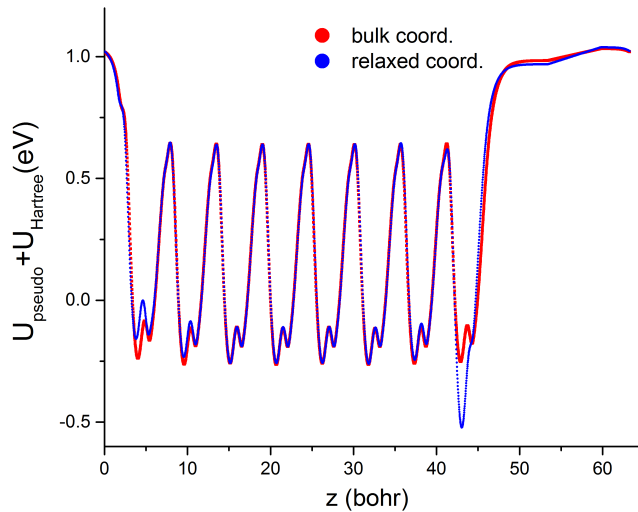


그림 4: 두께 16층짜리 TaAs 판에 대해  $z$  방향 안정화작업을 하기 전과 한 후에 대해  $z$ 에 따라 pseudopotential과 하트리 에너지의 합을  $x-y$ 평면에서 평균을 낸 값을 표현한 그래프

이제 in-plane 방향의 표면 안정화 결과를 소개한다. 이는 격자 상수

$a$  만을 바꾸어가며 에너지가 최소가 되는  $a$ 를 구하는 식으로 진행하였다. 그림 3(a)에서 얇은 TaAs 판을  $z$  방향으로 안정화시킬 경우 전체 두께는 살짝 감소하는 것을 알 수 있는데, in-plane 방향의 안정화도 기본적으로 격자의 크기를 수축시키는 결과를 가져왔다. 그림 5는 TaAs 판의 두께에 따라 in-plane 방향으로의 안정화가 격자 상수  $a$ 를 얼마나 수축시켰는지를 보여준다. 기본적으로 두께가 클수록 덩어리 구조의 격자 상수와 가까워진다는 것을 알 수 있는데, 이는 두께가 무한으로 가는 극한이 덩어리 구조임을 볼 때 당연한 결과이다. 덩어리 구조의 단위 결정 격자인 8층을 기준으로 8의 배수인 16층 24층 32층의 값만 볼 경우 이 경향은 요동이 없이 뚜렷하게 나타난다.

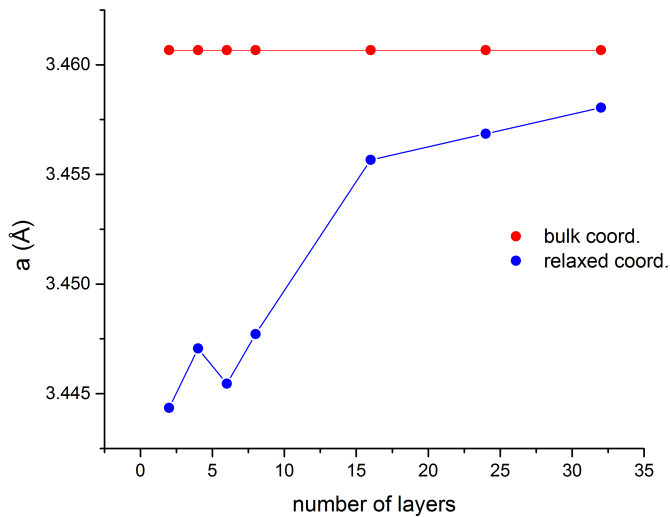


그림 5: 얇은 TaAs 판의 두께에 따른 격자 상수  $a$ 의 변화

## 3.2 전자 띠 구조

결과로 얻은 전자 띠 구조를 소개한다. 먼저 표면 안정화를 마친 TaAs 판 하나에 대한 결과를 분석한 뒤, 표면 안정화가 전자 띠 구조에 미친 영향을 보고, 마지막으로 두께에 따라 전자 띠 구조가 어떻게 바뀌는지를 확인한다.

두께 16층 짜리 TaAs 판에 대해 표면 안정화 후에 얻어진 좌표로 계산한 전자 띠 구조를 그림 6에 표현하였다. 계산된 각 준위는 atomic orbital projection을 통해 해당 준위가 어떤 원자에 localized 된 것인지 또는 어느 원자 간 결합에 영향을 주고 있는지 알 수 있고, 그 가중치를 통해서 해당 준위의 real-space에서의  $z$  기대값을 구할 수도 있다. 그림 6(a)에서의 각 점에 부여된 색은 이를 표현한 것이며, 해당 색이 어느 위치를 표현하는지는 6(b)를 통해 알 수 있다. 즉 하늘색 계열이 Ta 극단의 표면 준위(surface states)이고, 초록색 계열은 덩어리 준위(bulk states)이며, 보라색 계열은 As 극단의 표면 준위이다.

그림 6(a)의 전자 띠 구조를 들여다보면 먼저 TaAs 판은 점대칭성(inversion symmetry)이 결여되어 있어 스핀 축퇴가 나뉘어 선이 두 개씩 같이 있는 것을 볼 수 있다. 또,  $M-X-\Gamma$  방향과  $M-Y-\Gamma$  방향의 띠 구조는 거의 비슷하지만 조금 다른 양상을 보이는데, 이는 덩어리 계산이 아닌 판 계산을 함으로써  $C_{4v}$  대칭이 깨지고  $C_{2v}$ 만 남기 때문이다.  $C_{4v}$  대칭이 살아있는 덩어리 계산에서는 완벽하게 이 두 부분이 같아야하는데, 실제로 표면계산의 결과인 그림 6(a)에도  $M-X-\Gamma$ 와  $M-Y-\Gamma$  위에서 의의 띠 구조는 덩어리 준위들은 거의 동일한데 반해 큰 차이가 나는 부분들은 표면 근처에 있음을 확인할 수 있다.

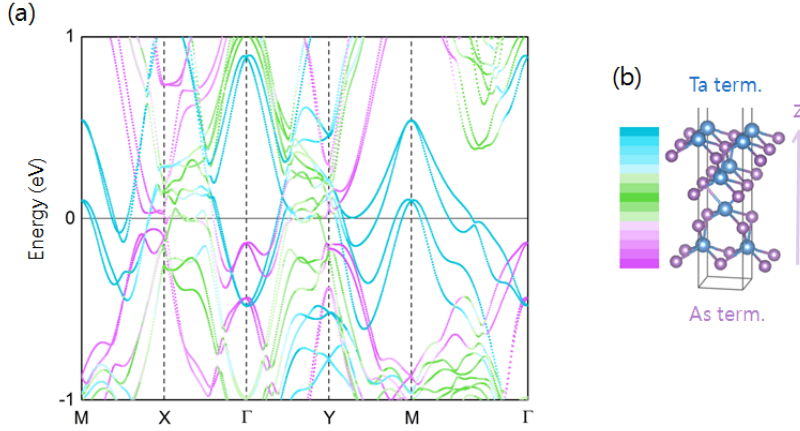


그림 6: (a) 표면 안정화를 거친 두께 16층 짜리 TaAs 판의 전자 띠 구조 (b)  $z$ 에 따른 color grading

페르미 에너지 근처에서 양 극단의 표면 준위들을 비교하자. Ta 극단의 경우  $M-X$  방향에서는 electron-like한 (두 개씩 거의 축퇴된 두 쌍의) 띠 4개가 페르미 에너지를 가르며  $M-Y$  방향에서는 두 개의 electron-like한 띠가 페르미 에너지를 가르는데 그 중 하나는 거의 걸쳐있다. 이에 반해 As 극단의 경우  $M-X$  방향과  $M-Y$  방향 모두 페르미 에너지는 band gap에 해당하는 에너지 구간 안에 있다.  $M-\Gamma$  방향의 경우 마찬가지로 As 극단의 준위들은 페르미 에너지 근처에서 보다 아래쪽에 분포해있으며, Ta 극단의 띠는 축퇴가 많이 풀린 두 쌍의 총 4개의 띠가 페르미 에너지를 가르다. 양 극단의 표면 준위들은 대부분 텅어리 준위의 band gap에 해당하는 부분에 있지만,  $X$ 와  $Y$  점 근처에서는 강한 bulk-surface hybridization이 존재하기 때문에  $X-\Gamma-Y$  상에서의 경우 양 극단의 표면 띠는 잘린 채로 불연속적인 부분이 나타나며, 색을 구분하지 않고 이어진대로 따라갈

경우 덩어리 준위에 해당하는 색으로 바뀔 수 있다.

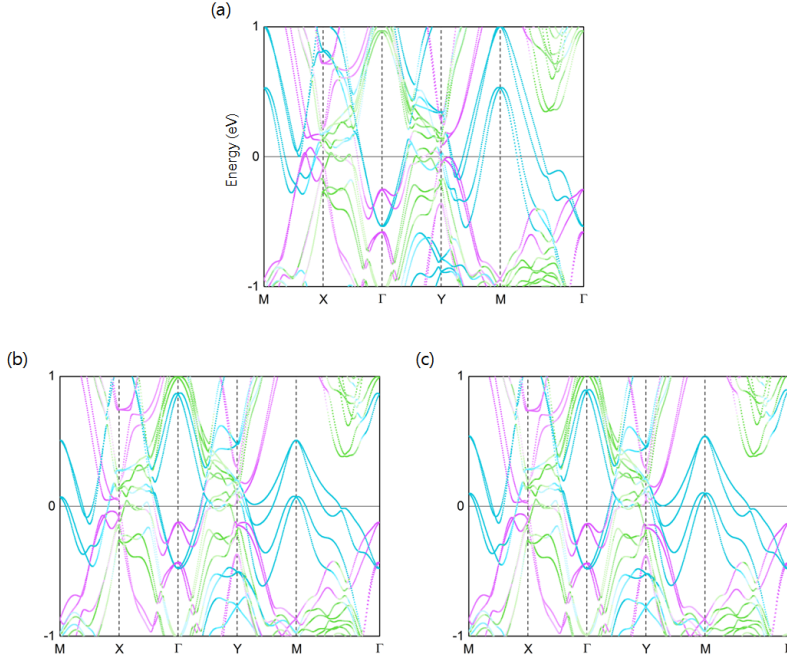


그림 7: 두께 16층 짜리 TaAs 판의 전자 띠 구조 (a) 안정화 하기 전 (b)  $z$  방향으로 표면 안정화 (c) 격자 상수까지 조절하여 표면 안정화

이제 표면 안정화가 전자 띠 구조에 미친 영향을 확인한다. 그림 7에서 두께 16층 짜리의 TaAs 판에서 표면 안정화에 따라 전자 띠 구조가 바뀌는 것을 확인할 수 있다. 그래프상 점들의 색은 그림 6과 같은 방법으로 부여하였다. 그림 7(c)의 경우 그림 6(a)과 같은 그림이. 다만  $z$  방향 안정화 후의 계산결과인 그림 7(b)와 그림 7(c)는 거의 차이가 없음을 알 수 있다. 이는 그림 5에서 알 수 있는 것처럼 두께 16층짜리 경우에서 격자상수는 이내의 약  $0.005\text{\AA}$ 의 변화(0.2% 이내)만 있었기 때문이다. 이

에 반해 그림 7(a)는 나머지 둘과 차이를 보여주는데, 이 차이는 덩어리 준위(bulk states)가 아닌 표면 준위(surface states)들에서 더 두드러진다. 그림 3(a)에서 볼 수 있듯이  $z$  방향의 안정화가 양 극단 표면에 위치한 원자들의 좌표에만 큰 영향을 미친 것이 그 까닭이다. 특히  $M-X$  선을 따라 볼 때, 표면 안정화를 함으로써 페르미 에너지를 지나는 띠는 Ta 극단에서 두 개 증가하고, As 극단에서 두 개가 감소함을 볼 수 있다. 이런 차이들은 2차원 페르미 표면을 그릴 경우 더 두드러질 것으로 예상되며, 다음 절에서 그 결과를 볼 수 있다.

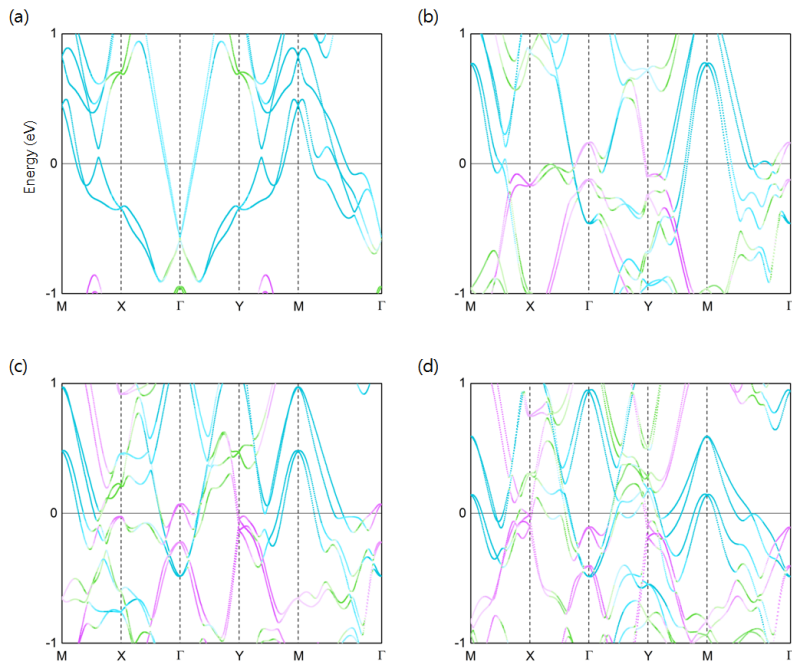


그림 8: 두께가 8층(덩어리 단위 격자의 두께)이하인 경우의 전자 띠 구조. 각각 (a) 2층 (b) 4층 (c) 6층 (d) 8층의 경우이다.

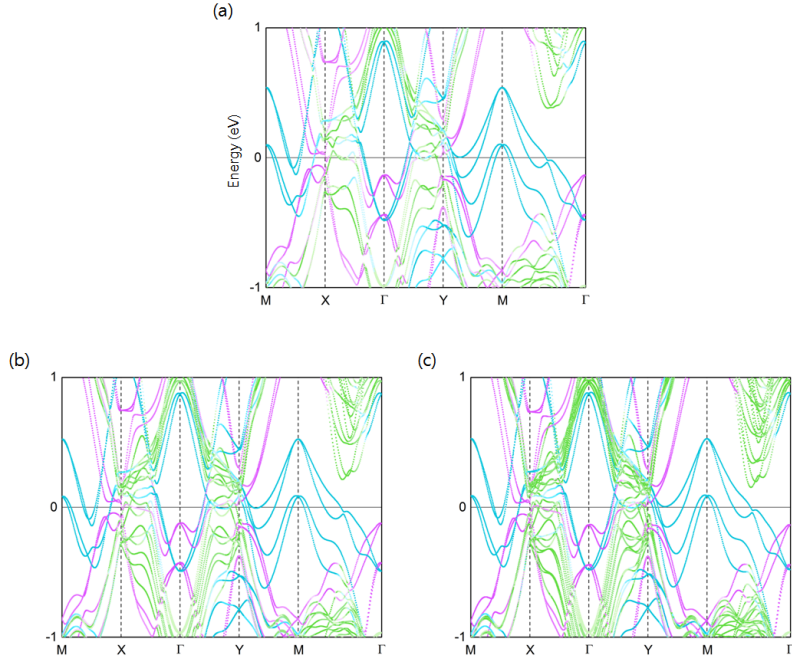


그림 9: 두께가 8층(덩어리 단위 격자의 두께)의 배수인 경우의 전자 띠 구조. 각각 (a) 16층 (b) 24층 (c) 32층의 경우이다.

이 절의 마지막으로 두께에 따른 전자 띠 구조의 변화를 그림 8과 그림 9를 통해 소개한다. 마찬가지로 그래프상 점들의 색은 그림 6과 같은 방법으로 부여하였다. 두께가 8층 이하인 경우(2, 4, 6, 8층)부터 살펴보자. 8층은 덩어리 단위 격자의 두께이다. 너무 두께가 얇기 때문에 사실상 덩어리 준위(bulk states)의 파동함수들이 많지 않다는 것을 쉽게 알 수 있다. 먼저 2층만 계산을 할 경우에는 특별히  $C_{4v}$  대칭이 깨지지 않고 남아있어 그림 8(a)에서 볼 수 있듯  $M-X-\Gamma$  상의 띠 구조와  $M-Y-\Gamma$  상의 띠 구조는 동일하다. 2층 짜리 계산의 경우 대부분의 페르미 에너지 근처



준위는 Ta 극단에 localized 되어있다.  $\Gamma$  점 근처에 electron-like 한 띠가 있는데 이는 층 수가 올라갈수록 분리가 되는것을 다른 그림들과 비교를 통해 알 수 있다. 특히 두께가 충분히 커지는 그림 9의 경우와 비교하면 이를 더 잘 확인할 수 있다. 8(a)부터 시작하여 8(d) 까지 덩어리 단위적 자 만큼의 두께를 갖추는 동안 페르미 에너지 근처에 존재하는 As 극단의 준위들이 더 많아짐을 확인할 수 있으며,  $M$  점 위의 peak(Ta 극단 준위)가 점점 낮아짐도 알 수 있다. 기본적으로 에너지 값은 많이 바뀌지만 표면 준위들과 덩어리 준위들의 경향이 많이 유지가 된다.

그림 9에서는 덩어리 단위 격자를 쌓아올린 16, 24, 32층 두께의 경우를 알 수 있는데, 8(d)와 함께 묶어서 비교할 수 있다. 16층의 경우인 그림 9(a)은 앞서 보았던 그림 6(a) 또는 7(c)와 같다. 그래프 상에서 하늘색과 보라색으로 표현된 표면 준위들은 두께가 변화하여도 큰 변화가 없으며, 덩어리 준위들의 양이 많아짐을 알 수 있다. 페르미 에너지 근처에 덩어리 준위가 없는  $M - \Gamma$  상에서 특징들도 뚜렷하게 공유하며,  $X$  점과  $Y$  점에서 생기는 bulk-surface hybridization도 기본적으로 같은 경향성을 보인다. 이러한 점들은 표면의 특징은 내부의 크기의 영향을 적게 받는다는 사실과 일관성있게 볼 수 있다.

### 3.3 페르미 표면과 스핀 텍스처

2차원 페르미 표면과 스핀 텍스처 결과를 소개한다. 전자 띠 구조 결과와 마찬가지로 먼저 기준으로 사용한 표면 안정화를 마친 두께 16층 짜리 TaAs 판에 대한 결과를 확인하고, 이후 표면 안정화에 따른 변화와 두께에 따른 변화를 소개한다.

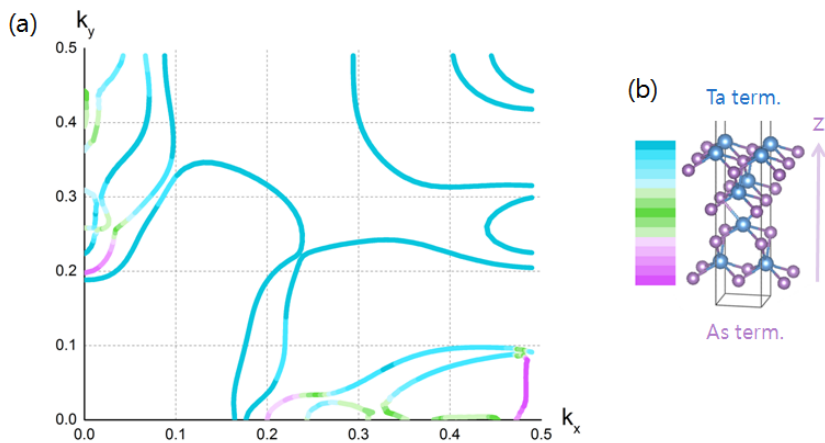


그림 10: (a) 표면 안정화를 거친 두께 16층 짜리 TaAs 판의 페르미 표면 (b)  $z$ 에 따른 color grading

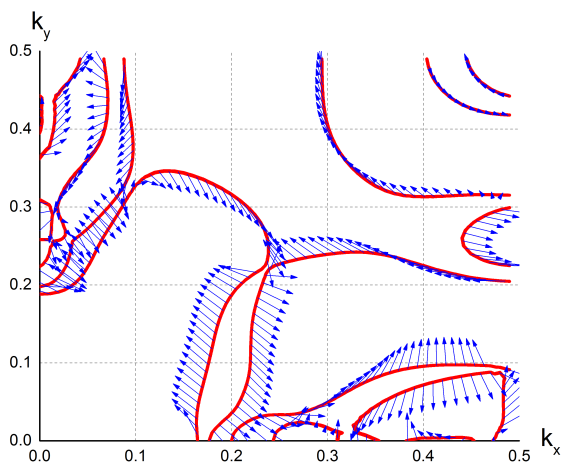


그림 11: 표면 안정화를 거친 두께 16층 짜리 TaAs 판의 스핀 텍스처. 빨간 점이 페르미 표면을 구성하고 파란 화살이 스핀의 방향과 크기를 보여준다.

그림 10과 그림 11을 통해 표면 안정화가 모두 진행된 두께 16층 짜리 TaAs 판의 페르미 표면과, 그 위에 스핀의 크기와 방향을 표시한 스핀 텍스처를 확인할 수 있다.  $C_{2v}$  대칭의 두 거울 판 때문에  $k_x$ 와  $k_y$ 가 모두 양수인 부분만 그래프로 나타내었다. 전자 띠 구조에서 예상한대로 페르미 표면은 대부분 Ta 극단의 준위들로 구성된다.

그림 12은 표면 안정화에 따른 페르미 표면의 변화를 표현한 것이다. 그림 12(a)의  $(k_x, k_y) = (0.25, 0.2)$  근방에서 위쪽으로 뻗어나가는 선이 12(b),(c)에서는 오른쪽으로 뻗어나가는 차이가 있으며, X, Y점 근처에서도 차이점이 분명한 것을 알 수 있다. 페르미 에너지 근처의 전자구조가 복잡하고 민감한 물질이기에 표면 안정화가 큰 영향을 미친다.

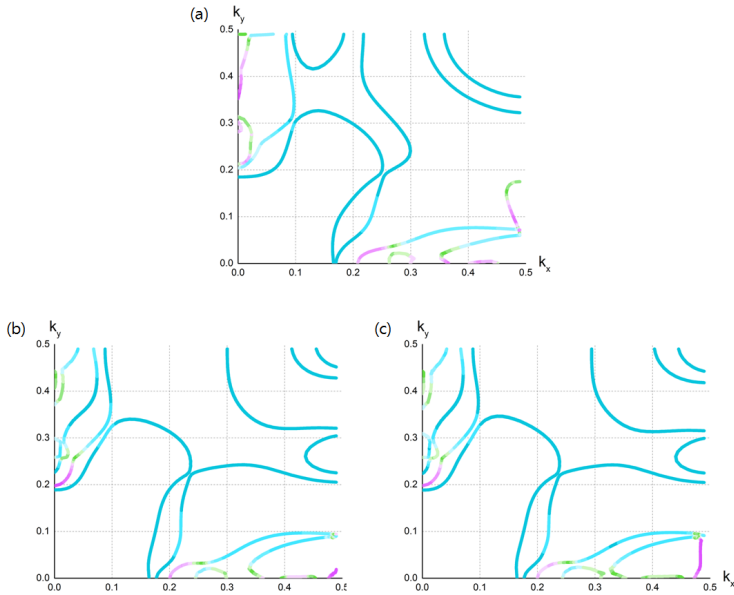


그림 12: 두께 16층 짜리 TaAs 판의 페르미 표면 (a) 안정화 하기 전 (b)  $z$  방향으로 표면 안정화 (c) 격자 상수까지 조절하여 표면 안정화. 색은그림 10(b)를 이용

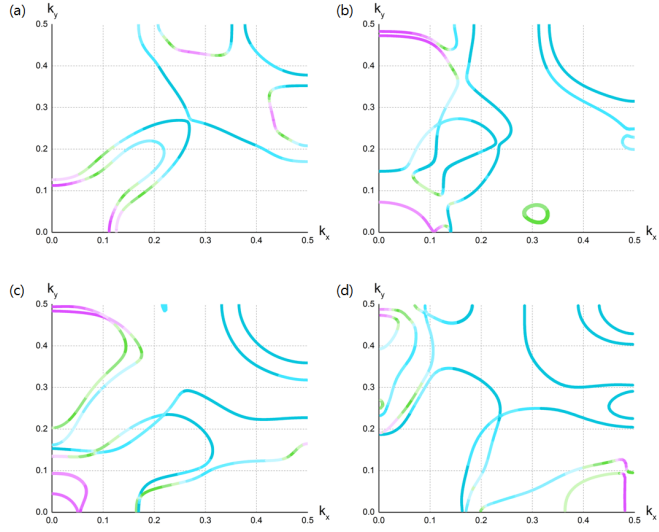


그림 13: 두께가 8층(덩어리 단위 격자의 두께)이하인 경우의 페르미 표면. 각각 (a) 2층 (b) 4층 (c) 6층 (d) 8층의 경우이다. 색은그림 10(b)를 이용

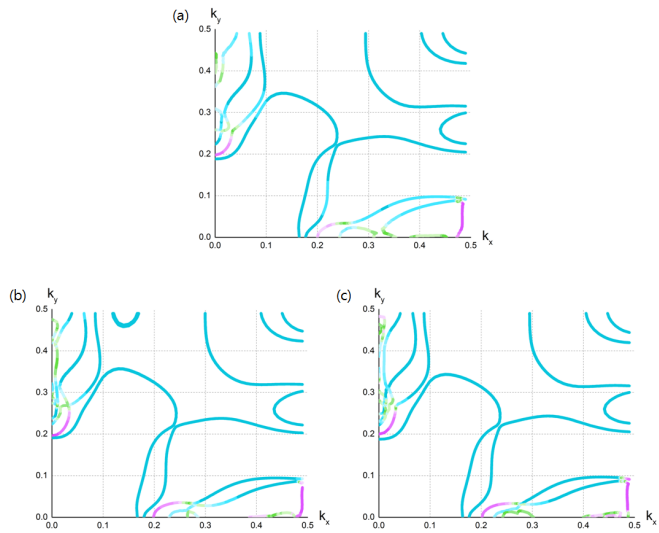


그림 14: 두께가 8층(덩어리 단위 격자의 두께)의 배수인 경우의 페르미 표면. 각각 (a) 16층 (b) 24층 (c) 32층의 경우이다. 색은그림 10(b)를 이용

그림 13과 그림 14를 통해 두께에 따른 페르미 표면의 변화를 확인할 수 있다. 덩어리 단위 격자의 두께인 8층(그림 13(d))의 경우를 포함해서 그림 14에 포함된 16, 24, 32층의 경우는 국부적인 선의 유무와 모양이 조금 다를 뿐 큰 틀에서는 기본적으로 같은 모양을 가지고 있다. 하지만 단위 격자를 쪼개어 만든 2, 4, 6층에 해당하는 그림 13(a),(b),(c)의 경우 전자 띠 구조부터 페르미 에너지 근처는 많이 달랐기 때문에, 전반적인 모양 자체가 크게 차이나는 것을 확인할 수 있다.

마지막으로 그림 15- 17는 그림 12- 14와 같은 경우들에 대해 스핀 텍스처를 나타낸 것이다. 추후에 페르미 표면에서 페르미 호를 찾아내는 과정에 도움을 줄 수 있는 그래프들이다.

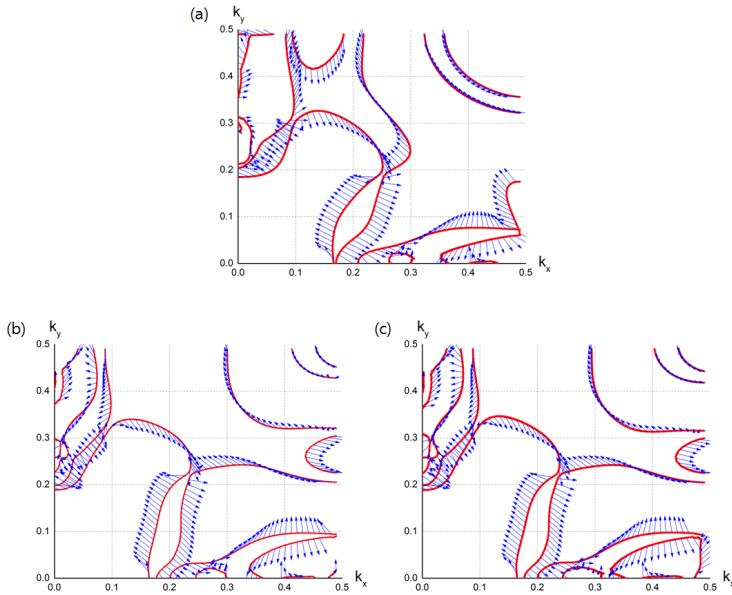


그림 15: 두께 16층 짜리 TaAs 판의 스핀 텍스처 (a) 안정화 하기 전 (b)  $z$  방향으로 표면 안정화 (c) 격자 상수까지 조절하여 표면 안정화

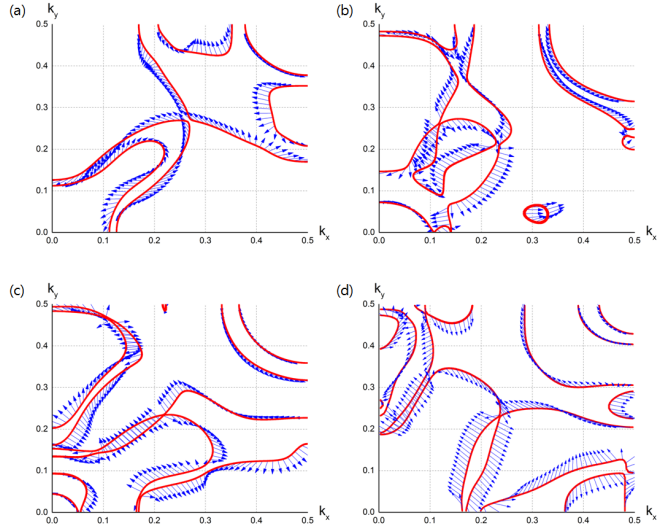


그림 16: 두께가 8층(덩어리 단위 격자의 두께)이하인 경우의 스핀 텍스처. 각각 (a) 2층 (b) 4층 (c) 6층 (d) 8층의 경우이다.

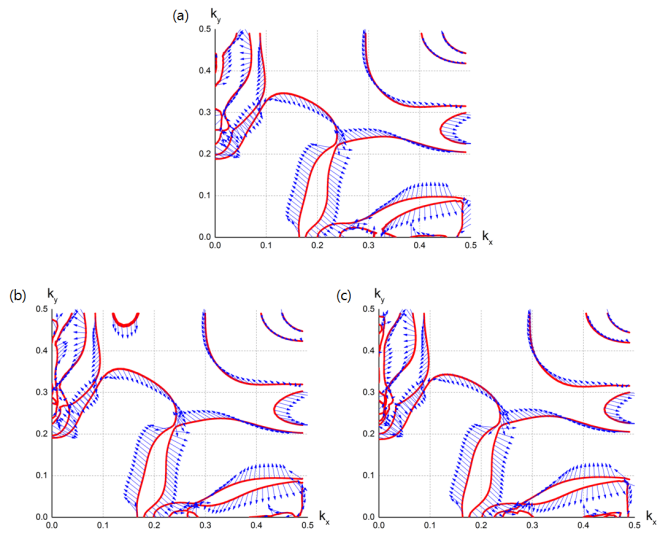


그림 17: 두께가 8층(덩어리 단위 격자의 두께)의 배수인 경우의 스핀 텍스처. 각각 (a) 16층 (b) 24층 (c) 32층의 경우이다.



## Chapter 4

### Conclusions

얇은 TaAs 판의 표면전자구조를 제일원리계산을 통해 알아보았다. 모든 계산은 밀도범함수이론을 기반으로 한 프로그램인 Quantum Espresso의 도움을 통해 진행하였다. 먼저 표면 안정화 작업은 판에 수직인 방향으로 원자의 위치를 조절하는 것이 결과로 나올 전자구조에 큰 영향을 미친다는 것을 확인했으며, 표면 안정화 작업에서 양 극단의 원자들의 위치만 크게 변한다는 것도 확인하였다. 다양한 두께에 따라서 전자 띠 구조, 2차원 페르미 표면 그리고 스핀 텍스처를 얻었으며, 모든 경우에 대해 TaAs 결정의 덩어리 단위 격자의 두께에 해당하는 8층을 기준으로 이의 배수에 해당하는 16, 24, 32층의 결과들은 모두 큰 차이를 보이지 않았다. 하지만 이보다 작은 2, 4, 6층만을 가지고 계산한 전자구조는 기존과 많은 차이점이 있었다.





# Bibliography

- [1] P. Hohenberg and W. Kohn, “Inhomogeneous electron gas,” *Phys. Rev.*, vol. 136, pp. B864–B871, Nov 1964.
- [2] P. Giannozzi, S. Baroni, N. Bonini, M. Calandra, R. Car, C. Cavazzoni, D. Ceresoli, G. L. Chiarotti, M. Cococcioni, I. Dabo, A. D. Corso, S. de Gironcoli, S. Fabris, G. Fratesi, R. Gebauer, U. Gerstmann, C. Gougoussis, A. Kokalj, M. Lazzeri, L. Martin-Samos, N. Marzari, F. Mauri, R. Mazzarello, S. Paolini, A. Pasquarello, L. Paulatto, C. Sbraccia, S. Scandolo, G. Sclauzero, A. P. Seitsonen, A. Smogunov, P. Umari, and R. M. Wentzcovitch, “QUANTUM ESPRESSO: a modular and open-source software project for quantum simulations of materials,” vol. 21, p. 395502, sep 2009.
- [3] P. Giannozzi, O. Andreussi, T. Brumme, O. Bunau, M. B. Nardelli, M. Calandra, R. Car, C. Cavazzoni, D. Ceresoli, M. Cococcioni, N. Colonna, I. Carnimeo, A. D. Corso, S. de Gironcoli, P. Delugas, R. A. DiStasio, A. Ferretti, A. Floris, G. Fratesi, G. Fugallo, R. Gebauer, U. Gerstmann, F. Giustino, T. Gorni, J. Jia, M. Kawamura, H.-Y. Ko, A. Kokalj, E. Küçükbenli, M. Lazzeri, M. Marsili, N. Marzari, F. Mauri, N. L. Nguyen, H.-V. Nguyen, A. O. de-la Roza, L. Paulatto, S. Poncé, D. Rocca, R. Sabatini, B. Santra, M. Schlipf, A. P. Seitsonen, A. Smogunov, I. Timrov, T. Thonhauser, P. Umari, N. Vast, X. Wu, and S. Baroni, “Advanced capabilities for materials modelling with quantum ESPRESSO,” *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 29, p. 465901, oct 2017.
- [4] H. Weng, C. Fang, Z. Fang, B. A. Bernevig, and X. Dai, “Weyl semimetal phase in noncentrosymmetric transition-metal monophosphides,” *Phys. Rev. X*, vol. 5, p. 011029, Mar 2015.

- [5] S.-M. Huang, S.-Y. Xu, I. Belopolski, C.-C. Lee, G. Chang, B. Wang, N. Alidoust, G. Bian, M. Neupane, C. Zhang, S. Jia, A. Bansil, H. Lin, and M. Z. Hasan, “A weyl fermion semimetal with surface fermi arcs in the transition metal mononitride class,” *nature communications*, vol. 6, p. 7373, June 2015.
- [6] X. Wan, A. M. Turner, A. Vishwanath, and S. Y. Savrasov, “Topological semimetal and fermi-arc surface states in the electronic structure of pyrochlore iridates,” *Phys. Rev. B*, vol. 83, p. 205101, May 2011.
- [7] S.-Y. Xu, I. Belopolski, N. Alidoust, M. Neupane, G. Bian, C. Zhang, R. Sankar, G. Chang, Z. Yuan, C.-C. Lee, S.-M. Huang, H. Zheng, J. Ma, D. S. Sanchez, B. Wang, A. Bansil, F. Chou, P. P. Shibayev, H. Lin, S. Jia, and M. Z. Hasan, “Discovery of a weyl fermion semimetal and topological fermi arcs,” *Science*, vol. 349, no. 6248, pp. 613–617, 2015.
- [8] B. Q. Lv, H. M. Weng, B. B. Fu, X. P. Wang, H. Miao, J. Ma, P. Richard, X. C. Huang, L. X. Zhao, G. F. Chen, Z. Fang, X. Dai, T. Qian, and H. Ding, “Experimental discovery of weyl semimetal class,” *Phys. Rev. X*, vol. 5, p. 031013, Jul 2015.
- [9] L. X. Yang, Z. K. Liu, Y. Sun, H. Peng, H. F. Yang, T. Zhang, B. Zhou, Y. Zhang, Y. F. Guo, M. Rahn, D. Prabhakaran, Z. Hussain, S.-K. Mo, C. Felser, B. Yan, and Y. L. Chen, “Weyl semimetal phase in the non-centrosymmetric compound  $\text{TaAs}$ ,” *nature physics*, vol. 11, pp. 728–732, August 2015.
- [10] Y. Sun, S.-C. Wu, and B. Yan, “Topological surface states and fermi arcs of the noncentrosymmetric weyl semimetals  $\text{TaAs}$ ,  $\text{NbAs}$ , and  $\text{NbP}$ ,” *Phys. Rev. B*, vol. 92, p. 115428, Sep 2015.
- [11] S. Souma, Z. Wang, H. Kotaka, T. Sato, K. Nakayama, Y. Tanaka, H. Kimizuka, T. Takahashi, K. Yamauchi, T. Oguchi, K. Segawa, and Y. Ando, “Direct observation of nonequivalent fermi-arc states of op-

- posite surfaces in the noncentrosymmetric weyl semimetal nbp,” *Phys. Rev. B*, vol. 93, p. 161112, Apr 2016.
- [12] G. B. Osterhoudt, L. K. Diebel, M. J. Gray, X. Yang, J. Stanco, X. Huang, B. Shen, N. Ni, P. J. W. Moll, Y. Ran, and K. S. Burch, “Colossal mid-infrared bulk photovoltaic effect in a type-i weyl semimetal,” *nature materials*, vol. 18, pp. 471–475, March 2019.
- [13] W. Kohn and L. J. Sham, “Self-consistent equations including exchange and correlation effects,” *Phys. Rev.*, vol. 140, pp. A1133–A1138, Nov 1965.
- [14] L. Bengtsson, “Dipole correction for surface supercell calculations,” *Phys. Rev. B*, vol. 59, pp. 12301–12304, May 1999.



# Abstract

## First-principles calculations on the surface electronic structure of TaAs

Minkyu Shim

Department of Physics and Astronomy

The Graduate School

Seoul National University

Weyl semimetals are a new class of materials whose low-energy electronic excitations are described by the Weyl equation. Similar to the cases of Dirac fermions in graphene or the surface of topological insulators, Weyl fermions in a Weyl semimetal are the most robust electrons which only depend on the translation symmetries of the crystal lattice. With rising attention to the theoretical discovery of the topological Weyl structure in noncentrosymmetric transition-metal monophosphides TaP, TaAs, NbP and NbAs, experiments have successfully examined the properties of these Weyl semimetals. In this research, electronic structure of thin slabs of TaAs - which are not experimentally realized at present- were studied using first-principles calculation exploiting density functional theory.

Starting from the lattice constants and the crystal structure of TaAs, by cutting of adding to the unit cell, slabs with various thickness were designed.

Then for all the slabs, atomic position was relaxed to reach lowest crystal energy. The starting coordinates and the new coordinates are all used for the electronic structure calculation.

Electronic structure of all the cases were represented through band structure graph, 2D fermi surface and spin textures. Both bulk and surface states of thin TaAs slabs were analyzed. It is shown that the surface relaxation on the out-of-plane direction of atomic coordinates affect crucially to the electronic structure, due to this material's nature of being highly sensitive near the fermi level. The thickness of slabs with multiples of unit cell height had almost the same surface electronic structure, whereas cutting the unit cell yielded different results.

**Keywords :** surface electronic structure, TaAs, Weyl semimetal,

**Student Number :** 2015-22590